

SAFETY GLASS AND INTERMEDIATE FILM THEREFOR

Patent Number: JP7314609
Publication date: 1995-12-05
Inventor(s): SUZUKI MASAO; others: 01
Applicant(s): SEKISUI CHEM CO LTD
Requested Patent: ☐ JP7314609
Application Number: JP19940146399 19940628
Priority Number(s):
IPC Classification: B32B17/10; C03C27/12; C08L29/14
EC Classification:
Equivalents:

Abstract

PURPOSE:To provide an intermediate film used in safety glass not almost causing the lowering of bonding strength with the passage of time caused by outdoor exposure or the irradiation with UV rays and temp., excellent in piercing resistance and the scattering preventing properties of glass and having high functionality such as heat rays reflectivity.

CONSTITUTION:The intermediate film for safety glass held between a transparent plate 10 having a metal oxide layer or metal layer 11 formed on at least the inner surface thereof and a glass plate consists of a base layer 22 formed from a resin compsn. based on a polyvinyl acetal resin with an acetylation degree of 60-75mol% and modified silicone oil containing functional group modified silicone oil having a non-polar modifying group and a polar modifying group in one molecule thereof. A bonding strength adjusting layer 21 is provided to the surface on the side brought into contact with the surface having the metal oxide layer or metal layer 11 formed thereon of the transparent plate 10 of the base layer 22.

Data supplied from the esp@cenet database - I2

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-314609

(43) 公開日 平成7年(1995)12月5日

| (51) Int.Cl. ⁴ | 識別記号 | 庁内整理番号 | F I | 技術表示箇所 |
|---------------------------|-------|----------|-----|--------|
| B 3 2 B 17/10 | | | | |
| C 0 3 C 27/12 | | D | | |
| C 0 8 L 29/14 | L H A | | | |
| // C 0 8 F 16/38 | M L C | 9456-4 J | | |

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 15 頁)

(21) 出願番号 特願平6-146399

(22) 出願日 平成6年(1994)6月28日

(31) 優先権主張番号 特願平6-62645

(32) 優先日 平6(1994)3月31日

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000002174
積水化学工業株式会社
大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号

(72) 発明者 鈴木 雅雄
滋賀県甲賀郡水口町泉1259

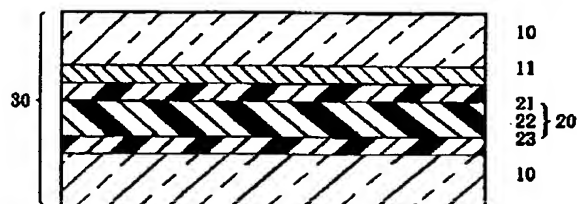
(72) 発明者 吉岡 忠彦
滋賀県甲賀郡水口町泉1259

(54) 【発明の名称】 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

(57) 【要約】

【目的】 屋外暴露や紫外線照射及び温度により経時で接着力の低下が殆どなく、耐貫通性及びガラスの飛散防止性に優れ、熱線反射性等の高機能性を有する合わせガラスに用いる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供する。

【構成】 少なくとも内面側に金属酸化物層又は金属層 11 が形成されている透明板 10 と、ガラス板 10 との間に挟着される合わせガラス用中間膜 20 であって、特定のポリビニルアセタール樹脂を主成分とする樹脂組成物より形成される基層 22 と、1 分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルを含有する変性シリコンオイルからなり、上記基層 22 の面のうち、上記透明板 10 の金属酸化物層又は金属層 11 が形成されている面に当接される側の面に設けられる接着力調整層 21 とからなる。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 少なくとも内面側に金属酸化物層又は金属層が形成されている透明板と、ガラス板との間に挟着される合わせガラス用中間膜であって、アセタール化度が 60～75 モル%のポリビニルアセタール樹脂を主成分とする樹脂組成物より形成される基層と、

1 分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイル；又は、

上記異種官能基変性シリコンオイル、並びに、非極性変性シリコンオイル及び極性変性シリコンオイルからなる群より選ばれる 1 種以上の変性シリコンオイルからなり、

上記基層の面のうち上記透明板の金属酸化物層又は金属層が形成されている面に当接される側の面に設けられる接着力調整層 1 とからなることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

【請求項 2】 少なくとも内面側に金属酸化物層又は金属層が形成されている透明板と、ガラス板との間に挟着される合わせガラス用中間膜であって、アセタール化度が 60～75 モル%のポリビニルアセタール樹脂を主成分とする樹脂組成物より形成される基層と、

1 分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイル；又は、

上記異種官能基変性シリコンオイル、並びに、非極性変性シリコンオイル及び極性変性シリコンオイルからなる群より選ばれる 1 種以上の変性シリコンオイルからなり、

上記基層の面のうち上記透明板の金属酸化物層又は金属層が形成されている面に当接される側の面に設けられる接着力調整層 1 と、

非極性変性シリコンオイル、極性変性シリコンオイル、並びに、1 分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルからなる群より選ばれる 1 種以上の変性シリコンオイルよりなり、上記基層の面のうちガラス板に当接される側の面に設けられる接着力調整層 2 とからなることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

【請求項 3】 少なくとも内面側に金属酸化物層又は金属層が形成されている透明板と、ガラス板との間に、合わせガラス用中間膜が挟着されている合わせガラスであって、上記合わせガラス用中間膜が請求項 1 又は 2 記載の合わせガラス用中間膜であり、該合わせガラス用中間膜中の接着力調整層 1 が上記透明板の金属酸化物層又は金属層に当接しており、且つ、該合わせガラス用中間膜中の、基層の面のうちガラス板に当接される側の面又は接着力調整層 2 がガラス板に当接していることを特徴とする合わせガラス。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、耐貫通性及びガラスの

飛散防止性に優れ、熱線反射性等の高機能を有する合わせガラスに用いられる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスに関する。

【0002】

【従来の技術】 従来より積層安全ガラスは、建築用及び自動車のフロントガラス用等に広く使用されてきた。この積層安全ガラスの代表的なものとして、可塑化されたポリビニルアセタール樹脂組成物からなる中間膜を一对のガラス板間に挟着して貼り合わせたものがある。このような積層安全ガラスは、外部から衝撃が加えられるとガラス部分が破損するが、ガラスの間に挟着された中間膜は容易には破損せず、また、ガラスは中間膜に貼着された状態にあるので、たとえ破損してもガラスの破片が飛散することは少ない。従って、輸送機関や建造物の中にいる人がガラスの破片により傷害を受けることを防ぐことができる。

【0003】 このような安全ガラスとしての機能を満足するためには、中間膜とガラスとの接着力がある範囲内に調整する必要がある。その理由は、ガラス板と中間膜との接着力が小さ過ぎる合わせガラスでは、外部からの衝撃によってガラスの破片が中間膜より剥がれて飛散してしまうし、逆にガラス板と中間膜との接着力が大き過ぎる合わせガラスでは、外部からの衝撃によってガラス板と中間膜とが共に割れて貫通してしまうからである。

【0004】 従って、ガラス板と中間膜との接着力を適度に調整するには、通常、中間膜中に接着力調整剤（衝撃強度増加剤と呼ばれることもある）を練り込んで含有させるか、或いは、中間膜の表面に接着力調整剤を付着させる方法が採用されており、中間膜中の含水量も調節される。

【0005】 上記接着力調整剤としては、一般にカルボン酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩、変性シリコンオイル等が使用されている（例えば、特公昭 45-32071 号公報、特公昭 55-29950 号公報、等参照）。

【0006】 ところで、近年、ガラス板の内側面に高機能を有する層を設け、選択光線透過性及透明電導性等の高機能を付与した合わせガラスが提案されている。例えば、熱線反射ガラスや結露防止導電ガラス等であり、これら特殊な合わせガラスが建築物や自動車等に使用されはじめている。これらの特性は、主に高機能性の薄膜を真空蒸着法やスパッタリング法等によりガラス表面に形成することで得られる。

【0007】 高機能を有する層の構成としては、例えば、建築用熱線反射ガラスにおいては、ガラス板の内側面に金属酸化物層（熱線反射層）が設けられて構成されているものが多い。一方、自動車用熱線反射ガラスにおいては、ガラス板の内側面に銀などの金属層が金属酸化物で挟み込まれている層（熱線反射層）が設けられて構成されているものが多い。他の高機能を有する層につい

ても、いずれも金属酸化物層又は金属層で形成されている場合が多い。

【0008】これら金属酸化物層又は金属層（熱線反射層）を用いた合わせガラスは、主に、ガラス板／熱線反射層／中間膜／ガラス板、ガラス板／中間膜／熱線反射シート／中間膜／ガラス板という構成であり、ガラス板又はシートに設けられている高機能層（熱線反射層）は、それを保護するために合わせガラスの内側に配置されている。それゆえ、金属酸化物層又は金属層と中間膜とが当接することになる。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】このような金属酸化物層又は金属層を有する合わせガラスにおいても、高度の耐貫通性とガラスの飛散防止性が要求されており、これ等の性能を付与するためには、金属酸化物層又は金属層と中間膜との接着力を適度に調整する必要がある。

【0010】ところが、カルボン酸金属塩からなる接着力調整剤を中間膜中に練り込むか或いは中間膜の表面に塗工したものは、金属酸化物層又は金属層のない通常の合わせガラスと異なり、屋外暴露や紫外線照射により経時的に両者間の接着力が低下しやすく、衝撃等によりガラス板が中間膜より剥離しやすくなるという問題があった。

【0011】また、変性シリコンオイルからなる接着力調整剤を中間膜中に練り込んだものは、屋外暴露や紫外線照射による経時変化は小さいが、温度による接着力の経時変化が大きくなり、衝撃等によりガラス板が中間膜より剥離しやすくなるという問題があった。この接着力の低下は、変性シリコンオイルが液体であり、且つ、樹脂及び可塑剤と完全には相溶しないため、金属酸化物層又は金属層と中間膜との界面に徐々にブリードアウトしてくるためと考えられる。

【0012】本発明は、上記の問題を解決するものであり、その目的とするところは、屋外暴露、紫外線照射又は温度等により経時的に接着力が低下することが殆どなく、耐貫通性及びガラスの飛散防止性に優れ、熱線反射性等の高機能性を有する合わせガラスに用いられる合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することにある。

【0013】

【課題を解決するための手段】請求項1記載の発明の合わせガラス用中間膜は、少なくとも内面側に金属酸化物層又は金属層が形成されている透明板と、ガラス板との間に挟着される合わせガラス用中間膜であって、アセタール化度が60～75モル%のポリビニルアセタール樹脂を主成分とする樹脂組成物より形成される基層と、1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイル；又は、上記異種官能基変性シリコンオイル、並びに、非極性変性シリコンオイル及び極性変性シリコンオイルからなる群より選ばれる1種以上

の変性シリコンオイルからなり、上記基層の面のうち上記透明板の金属酸化物層又は金属層が形成されている面に当接される側の面に設けられる接着力調整層1とからなる。

【0014】請求項1記載の発明の合わせガラス用中間膜中の基層は、アセタール化度が60～75モル%の範囲にあるポリビニルアセタール樹脂に可塑剤を含有させた可塑化ポリビニルアセタール樹脂からなる樹脂組成物より形成される。上記アセタール化度は、低くなるとポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が低下し、高くなると得られた合わせガラス用中間膜を使用した合わせガラスの耐貫通性が低下するため、60～75モル%の範囲に限定される。

【0015】上記ポリビニルアセタール樹脂としては、従来より合わせガラス用中間膜に用いられている樹脂、例えば、ポリビニルアルコールが炭素数4～10のアルデヒドでアセタール化された樹脂等が挙げられる。

【0016】上記ポリビニルアセタール樹脂を調製するのに使用されるポリビニルアルコールの平均重合度は、低くなると得られた合わせガラス用中間膜を使用した合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、高くなると合わせガラス用中間膜の樹脂強度が大きくなって安全性が低下することがあるため、800～3000が好ましい。また、上記ポリビニルアルコールのケン化度は、低くなると得られる合わせガラス用中間膜の透明性、耐熱性、耐光性等が低下することがあるため、95モル%以上であることが好ましい。

【0017】上記可塑剤としては、例えば、一塩基酸エステル、多塩基酸エステル等のエステル系可塑剤や、有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤などが挙げられる。上記一塩基酸エステルとしては、例えば、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール又はトリプロピレングリコールと、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプタン酸、n-オクチル酸、2-エチルヘキシル酸、ペラルゴン酸（n-ノニル酸）又はデシル酸等の有機酸などとの反応によって得られるグリコール系エステルが挙げられ、好ましくは、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコール-ジ-2-エチルヘキソエート、トリエチレングリコール-ジ-カプロネート、トリエチレングリコール-ジ-n-オクトエート等の、トリエチレングリコールと有機酸とのグリコール系エステルである。

【0018】上記多塩基酸エステルとしては、例えば、アジピン酸、セバチン酸、アゼライン酸等の有機酸と、炭素数4～8の直鎖状又は分枝状アルコールとのエステルが挙げられる。上記リン酸系可塑剤としては、例えば、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

【0019】上記可塑剤の含有量は、少なくなると、得られた合わせガラス用中間膜を使用した合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、多くなると、可塑剤がブリードアウトして得られた合わせガラス用中間膜を使用した合わせガラスの透明性や合わせガラス用中間膜とガラス板との接着性等が低下することがあるため、樹脂100重量部に対して5~80重量部が好ましい。

【0020】なお、上記合わせガラス用中間膜中の基層には、紫外線吸収剤、光安定剤、酸化防止剤、帯電防止剤等の公知の添加剤が含有されてもよい。また、カルボン酸金属塩、変性シリコンオイル等からなる接着剤調整剤が、ガラス板との接着力が低下しない程度に少量だけ含有されてもよい。

【0021】上記合わせガラス用中間膜中の基層の厚さは、薄くなっても厚くなっても得られた合わせガラス用中間膜を使用した合わせガラスの耐貫通性が低下することがあるため、0.1~2mmが好ましい。なお、この基層は、ポリビニルアセタール樹脂に所要量の可塑剤を含有させ、さらに必要に応じてその他の添加剤を含有させて、これを例えば押出機により熔融混練してシート状に成形することにより得られる。また、ロールで熔融混練した後プレスすることによっても得られる。

【0022】請求項1記載の発明の合わせガラス用中間膜中の接着剤調整層1は、1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイル；又は、上記異種官能基変性シリコンオイル、並びに、非極性変性シリコンオイル及び極性変性シリコンオイルからなる群より選ばれる1種以上の変性シリコンオイルからなる。換言すれば、上記接着剤調整層1は、異種官能基変性シリコンオイル；異種官能基変性シリコンオイルと非極性変性シリコンオイル；異種官能基変性シリコンオイルと極性変性シリコンオイル；又は異種官能基変性シリコンオイルと非極性変性シリコンオイルと極性変性シリコンオイルからなる。

【0023】上記異種官能基変性シリコンオイルの非極性変性基としては、例えば、アルコキシ基、ポリエーテル基等が挙げられ、極性変性基としては、例えば、アミノ基、エポキシ基等が挙げられる。異種官能基変性シリコンオイルとしては、例えば、1分子中にアミノ基及びアルコキシ基を有する変性シリコンオイル、エポキシ基及びポリエーテル基を有する変性シリコンオイル、アミノ基及びポリエーテル基を有する変性シリコンオイル、等が挙げられる。上記異種官能基変性シリコンオイルとしては、1種類のもので単独で用いられてもよいし、2種類以上のものが適宜併用されてもよく、必要に応じて他の成分が含有されてもよい。

【0024】上記非極性変性シリコンオイルとしては、例えば、ポリエーテル変性シリコンオイル、 α -メチルスチレン変性シリコンオイル、 α -オレフィン変性シリコンオイル、高級脂肪酸変性シリコンオイル、カルナバ

変性シリコンオイル、等が挙げられる。また、非極性変性シリコンオイルに属する変性シリコンオイルが2種以上用いられてもよい。上記極性変性シリコンオイルとしては、例えば、カルボキシル変性シリコンオイル、エポキシ変性シリコンオイル、エステル変性シリコンオイル、アミノ変性シリコンオイル、アルコール変性シリコンオイル、等が挙げられる。また、極性変性シリコンオイルに属する変性シリコンオイルが2種以上用いられてもよい。

10 【0025】上記非極性変性シリコンオイル、極性変性シリコンオイル、並びに、1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルは、ポリシロキサンに変性すべき化合物を反応させて得られる粘稠な液体であり、変性基が導入される部位は特に限定されず、ポリシロキサンの末端部分であってもよいし、側鎖部分であってもよい。また、変性の割合についても特に限定されない。

【0026】なお、接着剤調整層1には、必要に応じて他の成分が含有されてもよい。

20 【0027】請求項2記載の発明の合わせガラス用中間膜は、少なくとも内面側に金属酸化物層又は金属層が形成されている透明板と、ガラス板との間に挟着される合わせガラス用中間膜であって、アセタール化度が60~75モル%のポリビニルアセタール樹脂を主成分とする樹脂組成物より形成される基層と、1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイル；又は、上記異種官能基変性シリコンオイル、並びに、非極性変性シリコンオイル及び極性変性シリコンオイルからなる群より選ばれる1種以上の変性シリコンオイルからなり、上記基層の面のうち上記透明板の金属酸化物層又は金属層が形成されている面に当接される側の面に設けられる接着剤調整層1と、非極性変性シリコンオイル、極性変性シリコンオイル、並びに、1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルからなる群より選ばれる1種以上の変性シリコンオイルよりなり、上記基層の面のうちガラス板に当接される側の面に設けられる接着剤調整層2とからなる。

30 【0028】請求項2記載の発明の合わせガラス用中間膜中の基層及び接着剤調整層1としては、請求項1記載の発明の合わせガラス用中間膜におけるものと同様のものが用いられる。

【0029】請求項2記載の発明の合わせガラス用中間膜中の接着剤調整層2は、非極性変性シリコンオイル、極性変性シリコンオイル、並びに、1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルからなる群より選ばれる1種以上の変性シリコンオイルよりなり、上記基層の面のうちガラス板に当接される側の面に形成される。

50 【0030】上記非極性変性シリコンオイル、極性変性

シリコンオイル、及び1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルとしては、接着力調整層1において用いられる非極性変性シリコンオイル、極性変性シリコンオイル、及び異種官能基変性シリコンオイルが挙げられる。

【0031】上記接着力調整層2においては、変性シリコンオイルとして、非極性変性シリコンオイル、極性変性シリコンオイル、及び、異種官能基変性シリコンオイルのうち、いずれか単独で用いられてもよいし、2種以上併用されてもよい。また、非極性変性シリコンオイルに属する変性シリコンオイルが2種以上用いられてもよいし、極性変性シリコンオイルに属する変性シリコンオイルが2種以上用いられてもよいし、異種官能基変性シリコンオイルに属する変性シリコンオイルが2種以上用いられてもよい。なお、接着力調整層2には、必要に応じて他の成分が含有されてもよい。

【0032】上記接着力調整層1及び2は、変性シリコンオイルを適当な溶媒に溶解し、予め調製しておいた基層の表面に塗工して乾燥することにより得られる。上記変性シリコンオイルの塗工量は、少なくなると接着力調整の効果が得られにくくなり、多くなると接着力が低下し過ぎるため、 $10^{-3} \sim 10^{-1} \text{ g/m}^2$ が好ましく、より好ましくは $10^{-2} \sim 10^{-2} \text{ g/m}^2$ である。

【0033】上記変性シリコンオイルの塗工方法としては、例えば、基層の表面に変性シリコンオイルを、そのまま或いは溶剤に溶かした溶液を、塗布又はスプレーする方法、ロール表面から転写又は印刷する方法、基層を変性シリコンオイル或いはその溶液中に浸漬させる方法、等が挙げられる。

【0034】また、合わせ加工工程における脱気性を向上させる目的で、合わせガラス用中間膜の押出工程においてエンボスロールを用いて膜表面にエンボスを付与する場合、エンボスロールの表面に変性シリコンオイルあるいはその溶液を連続的に塗布しておくことにより、合わせガラス用中間膜の表面にエンボス加工処理と同時に変性シリコンオイルを塗工することもできる。

【0035】なお、合わせガラス用中間膜の表面にエンボスが付与されている場合、合わせガラス用中間膜の表面のエンボスを変形させないために、合わせガラス用中間膜の表面をあまり溶解しない溶剤が用いられてもよいし、合わせガラス用中間膜の表面と馴染ませるために、ある程度合わせガラス用中間膜の表面と相溶する溶剤が用いられてもよい。

【0036】前記透明板の内面側に形成されている金属酸化物層又は金属層は、透明電導性や熱線反射性等の高機能を付与するためのもので、透明電導性を付与するためには、例えば酸化インジウムと酸化錫との混合物(ITO)、酸化錫、酸化亜鉛、金、銀、銅等の被膜が形成される。熱線反射性付与のためには、例えば金、銀、銅、錫、アルミニウム、ニッケル、パラジウム及びこれ

等の合金或いは混合物の金属被膜が形成される。

【0037】上記金属酸化物層又は金属層は、透明板の内面側に直接形成されてもよく、或いは一旦適当なシートに予め形成され、このシートが透明板の内面側に適当な接着膜(中間膜)を介して接着されてもよい。なお、金属酸化物層又は金属層は、透明板の内面側のみならず、透明板の内面側と外面側の両面に形成されてもよい。

【0038】なお、上記透明板は、透明かつ一定の剛性を有する板状体であれば特に材質は限定されず、例えば、無機ガラス板、有機ガラス板等のガラス板が挙げられる。また、本発明において使用されるガラス板は、特に限定されず、上記のような無機ガラス板、有機ガラス板、等いずれが用いられてもよい。

【0039】請求項3記載の発明の合わせガラスは、請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜を用いて得られる合わせガラスである。上記合わせガラスを作製するには、ガラス板と、内面側に金属酸化物層又は金属層が形成された透明板との間に、上記合わせガラス用中間膜を挟持させる。その際、合わせガラス用中間膜中の接着力調整層1が透明板の金属酸化物層又は金属層に当接するように積層される。

【0040】次いで、常法により、オートクレーブなどの装置を用いてこの積層体を加熱、加圧する。こうして、請求項3記載の発明の合わせガラスが作製される。この場合、金属酸化物層又は金属層が形成された透明板と合わせガラス用中間膜との接着力と、金属酸化物層又は金属層が形成されていないガラス板と合わせガラス用中間膜との接着力とは、ほぼ同等であることが耐貫通性の点から好ましい。

【0041】上記接着力のうち、金属酸化物層又は金属層が形成された透明板と接着力調整層1との接着力は、変性シリコンオイルの種類、量、混合比、官能基等量、等を変えることにより調整され、金属酸化物層又は金属層が形成されていないガラス板と接着力調整層2との接着力は、変性シリコンオイルの種類、量、混合比、官能基等量、等を変えることにより調整され、更に、接着力調整層1及び/又は接着力調整層2において、それぞれの必要に応じてその他の公知の接着力調整剤が用いられ、その含有量を調節することにより調整されてもよい。

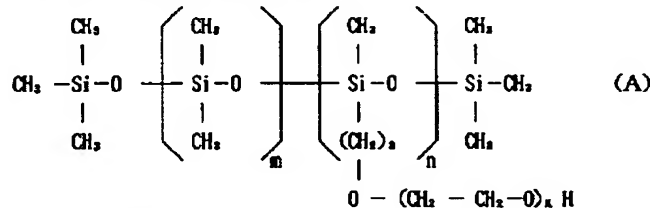
【0042】図1は、本発明の合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの代表的な例を示す、断面を表す模式図である。図1において、10はガラス板、11は金属酸化物層又は金属層、20は合わせガラス用中間膜、21は合わせガラス用中間膜中の接着力調整層1、22は合わせガラス用中間膜中の基層、23は合わせガラス用中間膜中の接着力調整層2、30は合わせガラスである。

【0043】

【作用】請求項1記載の合わせガラス用中間膜は、1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイル；又は、上記異種官能基変性シリコンオイル、並びに、非極性変性シリコンオイル及び極性変性シリコンオイルからなる接着力調整層1が透明板の金属酸化物層又は金属層が形成されている面に当接され、透明板と合わせガラス用中間膜との接着力が適度に調整される。

【0044】請求項2記載の合わせガラス用中間膜は、接着力調整層1による透明板との接着力の調整作用に加え、非極性変性シリコンオイル、極性変性シリコンオイル、並びに、1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルからなる群より選ばれる1種以上の変性シリコンオイルよりなる接着力調整層2により、ガラス板との接着力が適度に調整される。

【0045】上記接着力調整層1及び2に用いられる変性シリコンオイルは、カルボン酸金属塩に比べて耐湿性がよく、且つ、合わせガラス用中間膜中の基層に練り込まれず、その表面に塗工されて層を形成しており、経時的にブリードアウトすることなくガラス板との界面に常*



(式中、m及びnは、10～20の正の整数を示し、xは、2～8の正の整数を示す。)

【0048】(2) 接着力調整層1の調製

上記(1)で得られた基層用樹脂膜の一面に、1分子中にポリエーテル変性基とエポキシ変性基とを有する異種官能基変性シリコンオイル(信越化学社製「X-22-3667」)をアセトンに溶かした溶液を、ガーゼで薄く塗布し乾燥させて接着力調整層1を形成させて合わせガラス用中間膜を得た。得られた合わせガラス用中間膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1の含水率が0.4～0.5重量%となるように調整した。上記異種官能基変性シリコンオイルの塗布量は、約 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であった。なお、得られた接着力調整層1の内容を表2に示した。

【0049】(3) 合わせガラスの作製

得られた合わせガラス用中間膜を縦305mm×横305mmの寸法に裁断し、同じ寸法の、ガラス板/I TOの層構成を有する導電性ガラス(厚さ2.5mm)とフロートガラス板(厚さ2.5mm)との間に、ガラス板/I TO/接着力調整層1/基層/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、ロールで予備接着した。次いで、130℃のオートクレーブで13kg/c

に一定量存在し、温度による経時変化も防止される。更に、練り込みの場合に比べて少量で効果を発揮する。

【0046】

【実施例】以下、本発明の実施例及び比較例について説明する。

実施例1

(1) 基層用樹脂膜の調製

フラスコに、重合度1700、ケン化度99.2%、アセタール化度65mol%のポリビニルブチラル樹脂100g、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート40g、紫外線吸収剤0.16g、酸化防止剤0.16g、下記一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイル0.025g及び酢酸マグネシウム0.03gを供給して混合した。得られた混合物を80℃に加熱された二本ロールでよく混練して厚さ0.8mm程度のシート状に成形し、これをスパーサーで規制したプレスで150℃に加熱加圧して厚さ0.76mmの基層用樹脂膜を得た。

【0047】

【化1】

30 m^2 の圧力で圧着して合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用い、下記方法にて耐光性試験を行って評価し、得られた結果を表3に示した。

【0050】耐光性試験

JIS R 3212の耐光性試験に準じ、750Wの石英ガラス水銀灯(紫外線)から230mmの距離に合わせガラスを置き、45℃で200時間照射した。紫外線照射前後の合わせガラスについてパンメル試験を行い、パンメル値を測定した。

【0051】パンメル試験

紫外線照射前後での上記合わせガラスを、 $-18 \pm 0.6 \text{ } ^\circ\text{C}$ の温度に16時間調整し、この合わせガラスの中央部(縦150mm×横150mmの部分)を0.45kgのヘッドを有するハンマーで打って、ガラスの粒径が6mm以下になるまで粉碎し、ガラスが部分剥離した後の合わせガラス用中間膜の露出度を、表1によってパンメル値で評価した。

【0052】

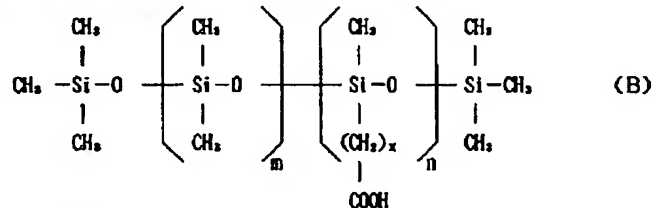
【表1】

| 中間膜の露出度 (%) | パンメル値 |
|-------------|-------|
| 100 | 0 |
| 95 | 1 |
| 90 | 2 |
| 85 | 3 |
| 80 | 4 |
| 40 | 5 |
| 20 | 6 |
| 10 | 7 |
| 5 | 8 |
| 2 | 9 |
| 0 | 10 |

【0053】なお、本発明においては、パンメル値が3～8の範囲で、しかも両面におけるパンメル値の差異の小さい合わせガラスが、耐貫通性及びガラスの飛散防止性に優れるので好ましい。パンメル値が3未満では接着力が低くなり、衝撃等によるガラスの飛散防止性が低下する。逆に、パンメル値が8を越えると接着力が高くなり、衝撃等による合わせガラスの耐貫通性が低下する。

【0054】実施例2

酢酸マグネシウムを混合しなかった以外は実施例1と同様にして基層用樹脂膜を得た。得られた基層用樹脂膜の一面に実施例1と同様にして接着力調整層1が形成された基層用樹脂膜を得た。得られた基層用樹脂膜の他面に、実施例1で用いたポリエーテル変性シリコンオイル及び異種官能基変性シリコンオイルの混合液（混合比1：7）を塗布し乾燥して接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。接着力調整層1における異



（式中、mは、10～20の正の整数を示し、nは、5～15の正の整数を示し、xは、2～8の正の整数を示す。）

【0058】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板／ITO／接着力調整層1／基層／接着力調整層2／フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られ

*種官能基変性シリコンオイルの塗布量は、約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $1 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2$ であった。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4～0.5重量%となるように調整した。上記接着力調整層1及び2の内容を表2に示した。

【0055】得られた合わせガラス用中間膜を用い、導電性ガラス（厚さ2.5mm）として、ガラス板／ZnO／Ag／ZnO、の層構成を有する導電性ガラスを用いた以外は実施例1と同様にして、ガラス板／ZnO／Ag／ZnO／接着力調整層1／基層／接着力調整層2／フロートガラス板、の層構成を有する合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表3に示した。

【0056】実施例3

実施例2における、接着力調整層2の変性シリコンオイルの混合液の代わりに、下記一般式（B）で表されるカルボキシル基変性シリコンオイル、並びに、1分子中にポリエーテル変性基及びアミノ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイル（信越化学社製「X-22-3939A」）の混合液（混合比1：5）を用いた以外は実施例2と同様にして合わせガラス用中間膜を得た。上記接着力調整層1における異種官能基変性シリコンオイルの塗布量は約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であった。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4～0.5重量%となるように調整した。上記接着力調整層1及び2の内容を表2に示した。

【0057】

【化2】

た結果を表3に示した。

【0059】実施例4

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を作製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例3で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びアミノ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルを塗布して接着力調整層1を形成し、該基層用樹脂膜の他面に、前記一般式（A）で表されるポリエーテル変性シリコンオイル、前記一般式（B）で表されるカルボキシル変性シリコンオイル、並びに、実施例2で用いたものと同様の、1分子中にポ

リエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルの混合液（混合比4：1：8）を塗布して接着力調整層2を形成して合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4～0.5重量%となるように調整した。上記接着力調整層1における異種官能基変性シリコンオイルの塗布量は約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表2に示した。

【0060】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板／＊

＊ITO／接着力調整層1／基層／接着力調整層2／フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表3に示した。

【0061】実施例5

前記一般式（A）で表されるポリエーテル変性シリコンオイルのみを約 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ 塗布して接着力調整層2を形成した以外は実施例4と同様にして合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表3に示した。なお、接着力調整層1及び2の内容を表2に示した。

【0062】

【表2】

| | | 熱線反射面側 | | ガラス側 | |
|-----|---|-------------------------------|------------------------|---|------------------------|
| | | 変性シリコンオイルの種類 | 塗布量(g/m ²) | 変性シリコンオイルの種類 | 塗布量(g/m ²) |
| 実施例 | 1 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基) | 1×10^{-3} | — | — |
| | 2 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基) | 5×10^{-3} | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 ポリエーテル変性) | 1×10^{-3} |
| | 3 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基) | 5×10^{-3} | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 アミノ基 カルボキシル変性) | 5×10^{-3} |
| | 4 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 アミノ基) | 5×10^{-3} | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 ポリエーテル変性 カルボキシル変性) | 5×10^{-3} |
| | 5 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 アミノ基) | 5×10^{-3} | ポリエーテル変性 | 1×10^{-3} |

【0063】

【表3】

| | | パ ン ネ ル 値 | | | |
|-----|---|-----------|--------|--------|--------|
| | | 熱線反射側 | | ガラス側 | |
| | | 紫外線照射前 | 紫外線照射後 | 紫外線照射前 | 紫外線照射後 |
| 実施例 | 1 | 7.5 | 6.5 | 7.5 | 6.5 |
| | 2 | 6 | 5 | 6 | 5 |
| | 3 | 5 | 4 | 5 | 4 |
| | 4 | 6 | 5 | 6 | 5 |
| | 5 | 6 | 5 | 6 | 5 |

【0064】実施例6

実施例1と同様にして基層用樹脂膜を調製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例1で用いたものと同様の、1分

子中にポリエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、実施例1で用いたものと同様の一般式（A）で表されるポリエーテル変性シリコンオイルの混合液（混合比5：1）をアセトンに溶かした溶液を、ガーゼで薄く塗布し乾燥させて接着力調整層1を形成させて合わせガラス用中間膜を得た。得られた合わせガラス用中間膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1の含水率が0.4～0.5重量%となるように調整した。上記変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であった。なお、得られた接着力調整層1の内容を表4に示した。

【0065】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板／ITO／接着力調整層1／基層／フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合

わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表5に示した。

【0066】実施例7

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を調製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例6で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルの混合液(混合比は、7:1とした)を、接着力調整層1を形成するために、実施例6と同様に塗布し、該基層用樹脂膜の他面に、接着力調整層2を形成するために、実施例2と同様の変性シリコンオイルの混合液を塗布し、乾燥して接着力調整層1及び接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。接着力調整層1における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $1 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $1 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2$ であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表4に示した。

【0067】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例2と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/ZnO/Ag/ZnO/接着力調整層1/基層/接着力調整層2/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表5に示した。

【0068】実施例8

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を作製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例6で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルの混合液(混合比は、2:1とした)を、接着力調整層1を形成するために、実施例6と同様に塗布し、該基層用樹脂膜の他面に、接着力調整層2を形成するために、実施例3と同様の変性シリコンオイルの混合液を塗布し、乾燥して接着力調整層1及び接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。接着力調整層1における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合

液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表4に示した。

【0069】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/ITO/接着力調整層1/基層/接着力調整層2/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表5に示した。

【0070】実施例9

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を調製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例3で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びアミノ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、実施例1で用いたものと同様の一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルの混合液(混合比5:1)を、接着力調整層1を形成するために、実施例6と同様に塗布し、該基層用樹脂膜の他面に、接着力調整層2を形成するために、実施例4と同様の変性シリコンオイルの混合液を塗布し、乾燥して接着力調整層1及び接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。接着力調整層1における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $1 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-5} \text{ g/m}^2$ であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表4に示した。

【0071】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/ITO/接着力調整層1/基層/接着力調整層2/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表5に示した。

【0072】実施例10

前記一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルのみを約 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ 塗布して接着力調整層2を形成した以外は実施例9と同様にして合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表5に示した。なお、接着力調整層1及び2の内容を表4に示した。

【0073】

【表4】

| | | 熱線反射面側 | | ガラス側 | |
|-----|----|---|-------------------------|---|-------------------------|
| | | 変性シリコンオイルの種類 | 塗布量 (g/m ²) | 変性シリコンオイルの種類 | 塗布量 (g/m ²) |
| 実施例 | 6 | 異種官能基変性 ポリエーテル基 (エポキシ基 ポリエーテル変性) | 5×10^{-5} | — | — |
| | 7 | 異種官能基変性 ポリエーテル基 (エポキシ基 ポリエーテル変性) | 1×10^{-4} | 異種官能基変性 ポリエーテル基 (エポキシ基 ポリエーテル変性) | 1×10^{-4} |
| | 8 | 異種官能基変性 ポリエーテル基 (エポキシ基 ポリエーテル変性) | 5×10^{-4} | 異種官能基変性 ポリエーテル基 (アミノ基 カルボキシル変性) | 5×10^{-3} |
| | 8 | 異種官能基変性 ポリエーテル基 (アミノ基 ポリエーテル変性) | 1×10^{-4} | 異種官能基変性 ポリエーテル基 (エポキシ基 ポリエーテル変性 カルボキシル変性) | 5×10^{-3} |
| | 10 | 異種官能基変性 ポリエーテル基 (アミノ基 ポリエーテル変性) | 1×10^{-4} | ポリエーテル変性 | 1×10^{-3} |

【0074】

【表5】

| | | パ ン ネ ル 値 | | | |
|-----|----|-----------|--------|--------|--------|
| | | 熱線反射側 | | ガラス側 | |
| | | 紫外線照射前 | 紫外線照射後 | 紫外線照射前 | 紫外線照射後 |
| 実施例 | 6 | 7.5 | 6.5 | 7.5 | 6.5 |
| | 7 | 6 | 5 | 6 | 5 |
| | 8 | 5 | 4 | 5 | 4 |
| | 9 | 6 | 5 | 6 | 5 |
| | 10 | 6 | 5 | 6 | 5 |

【0075】実施例11

実施例1と同様にして基層用樹脂膜を調製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例1で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、実施例3で用いたものと同様の一般式(B)で表されるカルボキシル変性シリコンオイルの混合液(混合比4:1)をアセトンに溶かした溶液を、ガーゼで薄く塗布し乾燥させて接着力調整層1を形成させて合わせガラス用中間膜を得た。得られた合わせガラス用中間膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。上記変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 1×10^{-5} g/m²であった。なお、得られた接着力調整層1の内容を表6に示した。

【0076】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の

導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/I TO/接着力調整層1/基層/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表7に示した。

【0077】実施例12

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を調製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例11で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、一般式(B)で表されるカルボキシル変性シリコンオイルの混合液(混合比は、5:1とした)を、接着力調整層1を形成するために、実施例11と同様に塗布し、該基層用樹脂膜の他面に、接着力調整層2を形成するために、実施例2と同様の変性シリコンオイルの混合液を塗布し、乾燥して接着力調整層1及び接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。接着力調整層1における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 1×10^{-4} g/m²であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 1×10^{-4} g/m²であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表6に示した。

【0078】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例2と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/ZnO/Ag/ZnO/接着力調整層1/基層/接着力

調整層2/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表7に示した。

【0079】実施例13

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を作製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例11で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、一般式(B)で表されるカルボキシル変性シリコンオイルの混合液(混合比は、3:1とした)を、接着力調整層1を形成するために、実施例11と同様に塗布し、該基層用樹脂膜の他面に、接着力調整層2を形成するために、実施例3と同様の変性シリコンオイルの混合液を塗布し、乾燥して接着力調整層1及び接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。接着力調整層1における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $1 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表6に示した。

【0080】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/I TO/接着力調整層1/基層/接着力調整層2/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表7に示した。

【0081】実施例14

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を調製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例3で用いたものと同様の、1分

子中にポリエーテル変性基及びアミノ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、実施例3で用いたものと同様の一般式(B)で表されるカルボキシル変性シリコンオイルの混合液(混合比4:1)を、接着力調整層1を形成するために、実施例11と同様に塗布し、該基層用樹脂膜の他面に、接着力調整層2を形成するために、実施例4と同様の変性シリコンオイルの混合液を塗布し、乾燥して接着力調整層1及び接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。接着力調整層1における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表6に示した。

【0082】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/I TO/接着力調整層1/基層/接着力調整層2/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表7に示した。

【0083】実施例15

前記一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルのみを約 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ 塗布して接着力調整層2を形成した以外は実施例14と同様にして合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表7に示した。なお、接着力調整層1及び2の内容を表6に示した。

【0084】

【表6】

| | | 熱線反射面側 | | ガラス側 | |
|-----|----|---|-------------------------|---|-------------------------|
| | | 変性シリコンオイルの種類 | 塗布量 (g/m ²) | 変性シリコンオイルの種類 | 塗布量 (g/m ²) |
| 実施例 | 11 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 カルボキシル変性) | 1×10^{-4} | — | — |
| | 12 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 カルボキシル変性) | 1×10^{-4} | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 ポリエーテル変性) | 1×10^{-4} |
| | 13 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 カルボキシル変性) | 1×10^{-4} | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 アミノ基 カルボキシル変性) | 5×10^{-3} |
| | 14 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 アミノ基 カルボキシル変性) | 5×10^{-4} | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 ポリエーテル変性 カルボキシル変性) | 5×10^{-3} |
| | 15 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 アミノ基 カルボキシル変性) | 5×10^{-4} | ポリエーテル変性 | 1×10^{-3} |

【0085】

【表7】

| | | パ ン メ ル 値 | | | |
|-----|----|-----------|--------|--------|--------|
| | | 熱線反射側 | | ガラス側 | |
| | | 紫外線照射前 | 紫外線照射後 | 紫外線照射前 | 紫外線照射後 |
| 実施例 | 11 | 7.5 | 6.5 | 7.5 | 8.5 |
| | 12 | 6 | 5 | 6 | 5 |
| | 13 | 5 | 4 | 5 | 4 |
| | 14 | 6 | 5 | 6 | 5 |
| | 15 | 6 | 5 | 6 | 5 |

【0086】実施例16

実施例1と同様にして基層用樹脂膜を調製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例1で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、実施例1で用いたものと同様の一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルと、実施例3で用いたものと同様の一般式(B)で表されるカルボキシル変性シリコンオイルの混合液(混合比4:1:1)をアセトンに溶かした溶液を、ガーゼで薄く塗布し乾燥させて接着力調整層1を形成させて合わせガラス用中間膜を得た。得られた合わせガラス用中間膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。上記変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 5×10^{-5} g/m²であった。なお、得られた接着力調整層1の内容を表8に示した。

【0087】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/I T O /接着力調整層1 / 基層 / フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表9に示した。

30 【0088】実施例17

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を調製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例16で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルと、一般式(B)で表されるカルボキシル変性シリコンオイルの混合液(混合比5:1:2とした)を、接着力調整層1を形成するために、実施例16と同様に塗布し、該基層用樹脂膜の他面に、接着力調整層2を形成するために、実施例2と同様の変性シリコンオイルの混合液を塗布し、乾燥して接着力調整層1及び接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。接着力調整層1における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 1×10^{-5} g/m²であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 1×10^{-4} g/m²であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表8に示した。

50 【0089】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1

と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例2と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/ $\text{ZnO}/\text{Ag}/\text{ZnO}$ /接着力調整層1/基層/接着力調整層2/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様に評価し、得られた結果を表9に示した。

【0090】実施例18

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を作製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例16で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びエポキシ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルと、一般式

(B)で表されるカルボキシル変性シリコンオイルの混合液(混合比3:1:1とした)を、接着力調整層1を形成するために、実施例16と同様に塗布し、該基層用樹脂膜の他面に、接着力調整層2を形成するために、実施例3と同様の変性シリコンオイルの混合液を塗布し、乾燥して接着力調整層1及び接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。接着力調整層1における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-4} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表8に示した。

【0091】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/ ITO /接着力調整層1/基層/接着力調整層2/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様に評価し、得られた結果を表9に示した。

【0092】実施例19

実施例2と同様にして基層用樹脂膜を調製し、該基層用樹脂膜の一面に、実施例3で用いたものと同様の、1分子中にポリエーテル変性基及びアミノ変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルと、実施例1で用いたものと同様の一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルと、実施例3で用いたものと同様の一般式(B)で表されるカルボキシル変性シリコンオイルの混合液(混合比4:1:2とした)を、接着力調整層1を形成するために、実施例16と同様に塗布し、該基層用樹脂膜の他面に、接着力調整層2を形成するために、実施例4と同様の変性シリコンオイルの混合液を塗布し、

乾燥して接着力調整層1及び接着力調整層2を形成し、合わせガラス用中間膜を得た。得られた接着力調整層1及び2が形成された基層用樹脂膜を恒温恒湿室中に静置し、接着力調整層1及び2の含水率が0.4~0.5重量%となるように調整した。接着力調整層1における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-5} \text{ g/m}^2$ であり、接着力調整層2における変性シリコンオイルの混合液の塗布量は、約 $5 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ であった。上記接着力調整層1及び2の内容を表8に示した。

【0093】得られた合わせガラス用中間膜を実施例1と同様の寸法に裁断し、同じ寸法の、実施例1と同様の導電性ガラスとフロートガラス板との間に、ガラス板/ ITO /接着力調整層1/基層/接着力調整層2/フロートガラス板、の層構成となるように挟み込み、実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様に評価し、得られた結果を表9に示した。

【0094】実施例20

前記一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルのみを約 $1 \times 10^{-3} \text{ g/m}^2$ 塗布して接着力調整層2を形成した以外は実施例19と同様にして合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様に評価し、得られた結果を表9に示した。なお、接着力調整層1及び2の内容を表8に示した。

【0095】比較例1

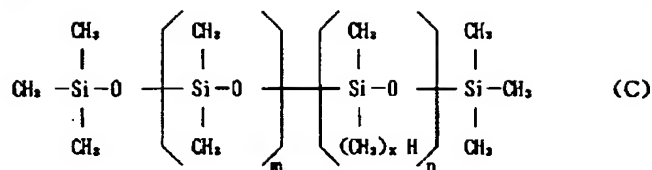
紫外線吸収剤の使用量を0.2g、酸化防止剤の使用量を0.2g、及び、酢酸マグネシウムの使用量を0.032gに変えたこと以外は実施例1と同様にして混合物を得、得られた混合物を二本ロールでよく混練して厚さ0.8mm程度のシート状に成形し、これをスパーサーで規制したプレスで150℃に加熱加圧して厚さ0.76mmの合わせガラス用中間膜を得た。得られた合わせガラス用中間膜を用いた以外は、実施例1と同様にして合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様に評価し、得られた結果を表9に示した。なお、接着力調整層1及び2の内容を表8に示した。

【0096】比較例2

ポリエーテル変性シリコンオイルの代わりに、下記一般式(C)で表されるアルキル基変性シリコンオイルを用いた以外は比較例1と同様にして合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様に評価し、得られた結果を表9に示した。なお、接着力調整層1及び2の内容を表8に示した。

【0097】

【化3】



(式中、m及びnは、10～20の正の整数を示し、xは、2～8の正の整数を示す。)

【0098】比較例3

比較例1と同様にして得られた厚さ0.76mmの合わせガラス用中間膜の両面に、前記一般式(A)で表されるポリエーテル変性シリコンオイルを塗布した。塗布量は両面とも約 10^{-3} g/m^2 であった。この合わせガラス用中間膜を恒温恒湿室中に静置し、含水率が0.4～0.5重量%になるように調整して得られた合わせガラス用中間膜を用いた以外は実施例2と同様にして合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表9に示した。なお、接着力調整層1及び2の内容を表8に示した。

【0099】比較例4

ポリエーテル変性シリコンオイルの代わりに上記一般式(C)で表されるアルキル変性シリコンオイルを用い、ガラス板/ZnO/Ag/ZnO、の層構成を有する導電性ガラスの代わりに、ガラス板/ITO、の層構成を有する導電性ガラスを用いた以外は比較例3と同様にして合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを用いて実施例1と同様にして評価し、得られた結果を表9に示した。なお、接着力調整層1及び2の内容を表8に示した。

【0100】

【表8】

| | | 熱線反射面側 | | ガラス側 | |
|-----|----|---|------------------------|---|------------------------|
| | | 変性シリコンオイルの種類 | 塗布量(g/m ²) | 変性シリコンオイルの種類 | 塗布量(g/m ²) |
| 実施例 | 16 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 ポリエーテル変性 カルボキシル変性) | 5×10^{-5} | — | — |
| | 17 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 ポリエーテル変性 カルボキシル変性) | 1×10^{-5} | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 ポリエーテル変性) | 1×10^{-4} |
| | 18 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 ポリエーテル変性 カルボキシル変性) | 5×10^{-4} | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 アミノ基 カルボキシル変性) | 5×10^{-3} |
| | 19 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 アミノ基 ポリエーテル変性 カルボキシル変性) | 5×10^{-5} | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 エポキシ基 ポリエーテル変性 カルボキシル変性) | 5×10^{-3} |
| | 20 | 異種官能基変性 (ポリエーテル基 アミノ基 ポリエーテル変性 カルボキシル変性) | 5×10^{-5} | ポリエーテル変性 | 1×10^{-3} |
| 比較例 | 1 | — | — | — | — |
| | 2 | — | — | — | — |
| | 3 | ポリエーテル変性 | 10^{-3} | ポリエーテル変性 | 10^{-3} |
| | 4 | アルキル変性 | 10^{-3} | アルキル変性 | 10^{-3} |

【0101】

【表9】

| | | パンメル値 | | | |
|-----|----|--------|--------|--------|--------|
| | | 熱線反射側 | | ガラス側 | |
| | | 紫外線照射前 | 紫外線照射後 | 紫外線照射前 | 紫外線照射後 |
| 実施例 | 16 | 7.5 | 8.5 | 7.5 | 8.5 |
| | 17 | 6 | 5 | 6 | 5 |
| | 18 | 5 | 4 | 5 | 4 |
| | 19 | 6 | 5 | 6 | 5 |
| | 20 | 6 | 5 | 6 | 5 |
| 比較例 | 1 | 7 | 3 | 6.5 | 5.5 |
| | 2 | 6.5 | 2.5 | 6 | 5 |
| | 3 | 10 | 9 | 8 | 5 |
| | 4 | 10 | 9 | 6.5 | 5.5 |

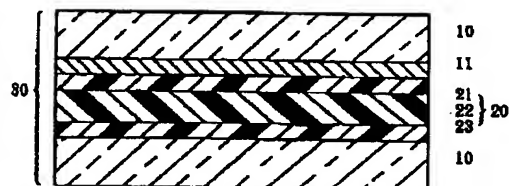
【0102】

【発明の効果】請求項1記載の発明の合わせガラス用中間膜は、上述のように構成されているので、請求項1記載の発明の合わせガラス用中間膜を用いて得られる合わせガラスは、金属酸化物層又は金属層により熱線反射性等の高機能性が付与され、特に1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイル；又は、上記異種官能基変性シリコンオイル、並びに、非極性変性シリコンオイル及び極性変性シリコンオイルからなる群より選ばれる1種以上の変性シリコンオイルからなる接着力調整層1が、金属酸化物層又は金属層の表面で適度の接着性を示し、屋外暴露、紫外線照射、温度等により経時的に接着力が低下することが防止

20

30

【図1】



される。

【0103】請求項2記載の発明の合わせガラス用中間膜は、請求項1記載の発明の合わせガラス用中間膜中の基層の他面に形成されている、非極性変性シリコンオイル、極性変性シリコンオイル、並びに、1分子中に非極性変性基及び極性変性基を有する異種官能基変性シリコンオイルからなる群より選ばれる1種以上の変性シリコンオイルよりなる接着力調整層2が、ガラス板との適度な接着性を示すため、合わせガラス用中間膜の両面で接着力に大きな差異を生じることなく適度に調整され、しかも屋外暴露、紫外線照射、温度等により経時的に接着力が低下することが防止される。

【0104】従って、請求項1及び2記載の合わせガラス用中間膜、並びに、請求項3記載の合わせガラスによれば、長期にわたって耐貫通性及びガラスの飛散防止性に優れ、熱線反射性等の高機能を有する合わせガラスを得ることができ、この合わせガラスは、自動車、航空機、建築物等の窓ガラスに好適に使用される。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの断面を表す模式図である。

【符号の説明】

- 10 ガラス板
- 11 金属酸化物層又は金属層
- 20 合わせガラス用中間膜
- 21 合わせガラス用中間膜中の接着力調整層1
- 22 合わせガラス用中間膜中の基層
- 23 合わせガラス用中間膜中の接着力調整層2
- 30 合わせガラス